

Evolution de la surveillance des PM10 en France : épisodes de pollution par les particules au printemps 2007

G. Aymoz^{(1)*}, B. Bessagnet⁽¹⁾, L. Rouïl⁽¹⁾, O. Le Bihan⁽¹⁾

⁽¹⁾: Direction des risques chroniques, Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques, Parc Technologique ALATA, BP 2, 60550 Verneuil-en-Halatte.

TITLE

PM10 episodes in France during spring 2007

ABSTRACT

Since the 1st January 2007, PM10 monitoring network in France has evolved, in order to account for volatile fraction of PM10. This evolution permitted the observation of high peaks of PM10 during spring 2007. Concentrations during these peaks would have been largely underestimated with measuring techniques used before 2007. A study, coupling chemical and modelling approach of the phenomenon has been launched by LCSQA (Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air), in collaboration with several AASQA (Association Agrée de Surveillance de la Qualité de l'Air, air monitoring network).

Chemical analysis of PM10 show that ammonium nitrate is the component at the origin of the observed peaks. The French forecasting system for air quality Prév'Air (www.prevoir.org) largely underestimated the peaks, and especially ammonium nitrate concentrations. A sensibility study shows that emissions due to agricultural practices seem to be at the origin of the peaks. The necessity of reconsidering these emissions as a function of meteorological conditions (especially the temperature) is highlighted.

RESUME

Depuis le 1er janvier 2007, le dispositif de surveillance des PM10 en France a évolué, de façon à prendre en compte la fraction volatile des particules. Une conséquence de cette évolution est l'observation, au printemps 2007, d'importants pics de particules : ces pics auraient été largement sous-évalués avec les techniques précédemment utilisées.

Le LCSQA (Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air), en collaboration avec plusieurs AASQA (Association Agrée de Surveillance de la Qualité de l'Air) a entrepris un travail de compréhension de l'origine des pics, couplant mesures de terrain et modélisation.

Les résultats expérimentaux montrent que, pour la plupart des pics étudiés, la fraction volatile est généralement supérieure à la fraction non-volatile. Des analyses chimiques ont permis de mettre en évidence la présence prépondérante du nitrate d'ammonium dans la plupart des cas, expliquant ponctuellement les larges fractions volatiles mesurées.

Sur le plan de la modélisation, le modèle CHIMERE utilisé dans le système Prév'Air (www.prevoir.org) a sous-estimé ces fortes concentrations, et en particulier les concentrations en nitrate d'ammonium. Les émissions d'espèces azotées lors des épandages massifs d'engrais à cette période de l'année, mal prises en compte, pourraient en grande partie expliquer les résultats. La nécessité de reconsidérer dans le modèle la dépendance de ces émissions aux conditions météorologiques (notamment les températures élevées qui favorisent l'évaporation) a été mise en évidence.

1. INTRODUCTION : CONTEXTE GENERAL DE LA SURVEILLANCE DES PM10

Les modalités de surveillance des concentrations atmosphériques de particules PM10 sont fixées par la directive 1999/30/CE du 22 avril 1999. Cette directive stipule que la mesure doit être réalisée en utilisant la méthode de référence décrite dans la norme NF EN 12341. Cette méthode, dite "gravimétrique", n'est cependant pas adaptée à la surveillance opérationnelle en continu de ce polluant. Les réseaux de surveillance français (AASQA), tout comme un grand nombre de réseaux européens, se sont donc équipés de systèmes de mesurage automatique de type TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) ou jauge radiométrique Bêta, qui sont des méthodes de référence aux USA.

A partir de l'année 2000, des études ont mis en évidence une sous-estimation des concentrations en PM10, due à l'évaporation de la partie volatile des PM10. Cette sous-estimation, par rapport à la méthode de référence EN12341, est de l'ordre 10 à 50 % en moyenne annuelle, mais peut dépasser 100 % sur des valeurs journalières.

Il a été montré, notamment au sein du LCSQA (Blanchard, 2002 et 2003) qu'une grande partie de la fraction volatile est constituée de nitrate d'ammonium. Des améliorations techniques ont été mises au point par les constructeurs des appareils automatiques. Un module adapté sur l'appareil (notamment le FDMS pour les TEOM) permet de compenser ces difficultés de mesure. Une série d'études a permis de démontrer l'équivalence des appareils équipés de ces modules avec la méthode de référence (Le Bihan, 2006 et 2007).

Depuis le 1^{er} janvier 2007, les réseaux de surveillance de la qualité de l'air fournissent des données PM10 tenant compte de la fraction volatile des aérosols. Ceci a permis d'observer des épisodes de pollution par les particules de grande ampleur au cours du printemps. Une analyse de ces épisodes, basée sur les observations et la modélisation, est proposée ici.

2. LES EPISODES DE POLLUTION AU PRINTEMPS 2007 : OBSERVATIONS

A plusieurs reprises durant le printemps 2007, des épisodes de pollution de particules importants, et inattendus dans leur amplitude à cette période de l'année, se sont produits en France. Les concentrations mesurées ont fréquemment dépassé $80 \mu\text{g.m}^{-3}$ en moyenne journalière sur des sites ruraux et urbains, avec une fraction volatile souvent très importante. Les pics ont principalement touché dans un premier temps (15-16 mars) une bande s'étirant du lyonnais au bordelais. Sur toute la période allant de mi-mars à début mai, la moitié nord de la France a connu de très fortes concentrations de PM10, en particulier sur la zone allant de la Bretagne au Nord-Pas-de-Calais, mais aussi de la région Centre jusqu'à l'est de la France. A titre d'illustration, la Figure 1 montre l'évolution des moyennes journalières en PM10 mesurées par TEOM-FDMS, et des ratios journaliers entre mesures TEOM-FDMS et TEOM 50°C sur 5 sites en France.

Le ratio permet de visualiser l'importance de la différence entre la mesure par TEOM-FDMS et la mesure par TEOM pendant les pics. Plusieurs prélèvements de particules ont pu être réalisés au cours de ces épisodes à fin d'analyse chimique. A chaque fois, les pertes de nitrate d'ammonium lors du prélèvement peuvent expliquer les différences entre concentrations mesurées par TEOM-FDMS et TEOM. Ces observations confirment, certes ponctuellement, mais sur des phénomènes de grande ampleur que la contribution du nitrate d'ammonium à la masse des PM10 lors des pics observés peut être de l'ordre de 50%. Notons aussi que la surveillance réalisée avant le 1^{er} janvier 2007, par TEOM principalement, ne permettait pas d'observer ces épisodes, et il est impossible de savoir quelle peut être leur fréquence.

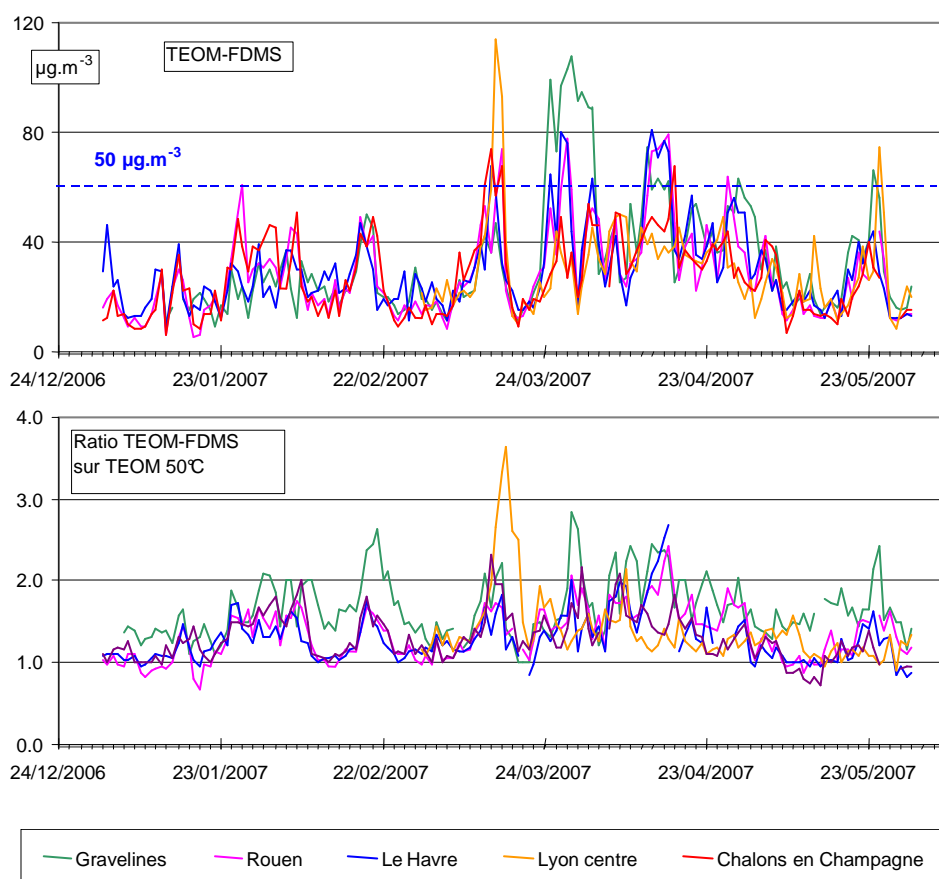


Figure 1 : Concentrations moyennes journalières en PM10 mesurées par FDMS et ratio entre mesures FDMS et TEOM 50°C sur 5 sites en France. Toutes les concentrations sont en $\mu\text{g.m}^{-3}$

3. MODELISATION DES EPISODES DE PARTICULES

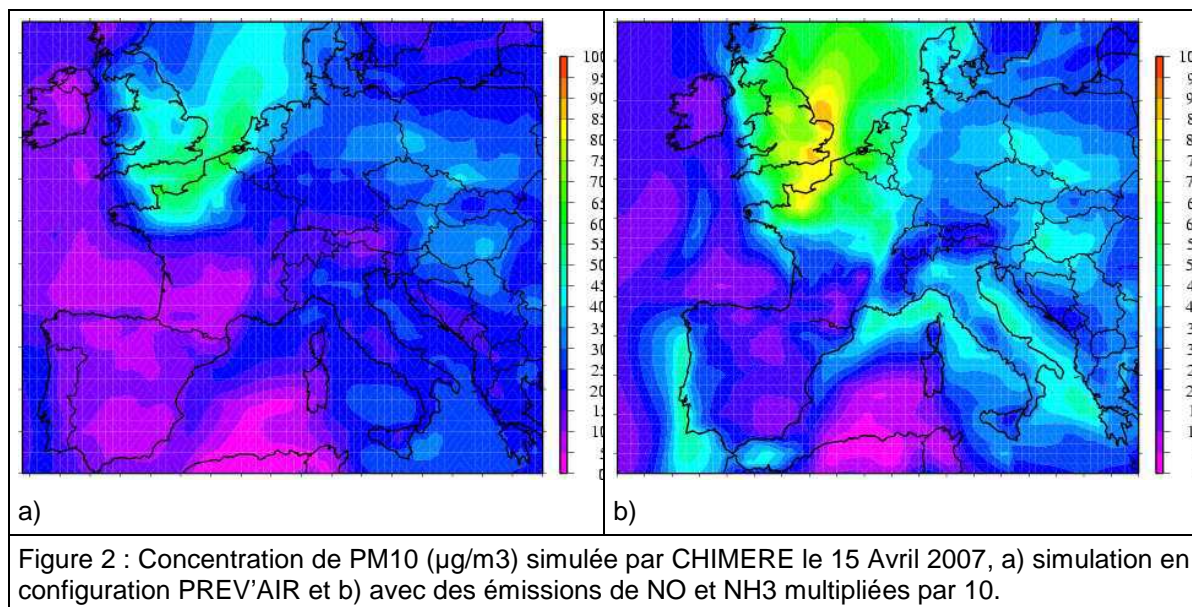
3.1 Comportement de CHIMERE lors des épisodes particuliers

L'analyse des cartes de prévisions PREV'AIR montre clairement une sous-estimation des concentrations de PM10 observées, d'un facteur 2 au moins. Les structures sont néanmoins bien reproduites pour les journées du 29/03 et du 15/04 (voir Figure 2).

Le modèle CHIMERE, utilisé dans Prév'Air, a été très souvent comparé à d'autres modèles Européens lors d'études menées dans le cadre de EMEP (www.emep.int). Les exercices EURODELTA et CITYDELTA ont fait une large place à la validation des modèles avec les observations et à l'intercomparaison des modèles participants. CHIMERE donne généralement des résultats très proches des autres modèles excepté pour les concentrations de sulfates et de particules primaires.

Il avait cependant déjà été noté (Bessagnet et al., 2005) une sous-estimation des concentrations en nitrate durant deux épisodes de PM10 en Mars et Avril 2003 sur un site en Ile-de-France. Il est donc possible que le modèle sous-estime ponctuellement les pics de concentrations en nitrate d'ammonium.

Les deux principaux composés azotés émis sont les oxydes d'azote (NO_x) et l'ammoniac (NH₃). Les oxydes d'azote sont principalement émis par le trafic routier, les industries et par tous les procédés de combustion, bien que la source agricole existe aussi (Bouwman et al. 2002). L'ammoniac est essentiellement émis par le secteur agricole, 96% selon les données fournies par EMEP en 2004.



Dans les inventaires d'émissions utilisés par les modèles de qualité de l'air, le flux d'ammoniac émis est généralement annuel, et ramené à une quantité émise par heure grâce à des profils moyens. Un des paramètres clé de ces émissions est pourtant la température du sol et les pratiques d'épandage. Des travaux récents (Liu et al., 2006) ont montré que la volatilisation de l'ammoniac était très fortement accrue lorsque la température était élevée lors de l'épandage.

Ces considérations pourraient expliquer un écart important entre les concentrations simulées avec les émissions prises en compte par le modèle CHIMERE (qui n'ont vraisemblablement pas les bons profils temporels) et les observations, notamment lors des épisodes de PM10 au printemps 2007 lorsque la température a été particulièrement élevée en France ou dans les pays voisins.

3.2 Etudes de sensibilité du modèle CHIMERE

La crédibilité de l'hypothèse d'une sous estimation des émissions azotées en entrée du modèle CHIMERE doit s'appuyer sur une sensibilité du modèle à ces émissions. Afin de tester ce paramètre, les émissions d'ammoniac et de NO issues de l'agriculture ont été multipliées par 10. CHIMERE est sensible à cette augmentation des émissions: les concentrations en PM10 sont multipliées par 2 à 3, ceci étant dû à une forte augmentation du nitrate d'ammonium (voir Figure 2).

4. CONCLUSION

L'évolution de la méthode utilisée pour la surveillance des PM10 en France a permis de mettre en évidence des pics de particules encore insoupçonnés. L'hypothèse de la source agricole d'espèces nitrées pouvant être à l'origine de ces pics a été émise, mais nécessite d'être vérifiée lors d'études spécifiques couplant approche chimique et modélisation.

RÉFÉRENCES

Bessagnet, B., Hodzic, A., Blanchard, O., Lattuati, M., Le Bihan, O., Marfaing, H., Rouil, L., "Origin of particulate matter pollution episodes in wintertime over the Paris Basin", Atmos. Environ., 39, 6159-6175, 2005.

Blanchard O., "Etude comparative entre le TEOM 1400 et différents préleveurs manuels sur filtre - caractérisation physico-chimique de l'aérosol atmosphérique de Paris". Rapport LCSQA, 52 pp, 2002.

Blanchard O., O. Le Bihan, "Caractérisation de l'aérosol atmosphérique en milieu urbain". Rapport LCSQA, 48 pp, 2003.

Bouwman A. F., Boumans L. J.M., Batjes N. H., Emissions of N₂O and NO from fertilized fields: Summary of available measurement data. Global Biogeochemical Cycles, Vol.16, No. 4, 1058, doi:1029/2001GB001811, 2002.

Le Bihan O., F. Mathé, C. Chambre, P. Bruno, H. Marfaing, "Demonstration of equivalence of PM automated monitoring methods: results of the first measurement campaign on a parisian urban background air quality station", Abstracts of the conference "Particles in Europe", 13-14 june 2006, Antwerp, Belgium, pp. 56-58, 2006.

Le Bihan O., F. Mathé, H. Marfaing, D. Robin, "Practical testing of equivalence demonstration for PM automated monitoring methods : the experience in France », Workshop on Equivalence Methods, JRC Ispra, 2-4th, 2007.

Liu G., Li Y., and Alva A., "Differences in the Temperature Quotients of Ammonia Emission on the Fertilized Soils from Florida and Washington". 18th World Congress of Soil Science July 9-15, 2006 - Philadelphia, Pennsylvania, USA.

REMERCIEMENTS

Le LCSQA remercie Atmo Rhône-Alpes, Air Normand, Atmo Nord-Pas-de-Calais et Atmo Champagne Ardenne pour avoir effectué et fourni les prélèvements et les données utilisées dans ce document. Atmo Champagne Ardenne remercie le laboratoire municipal et régional de la ville de Reims.